

## ⑫ 公開特許公報(A) 平2-80372

⑤ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

③ 公開 平成2年(1990)3月20日

C 04 B 35/58

1 0 4 B

7412-4G

審査請求 有 発明の数 1 (全5頁)

⑭ 発明の名称 半導体装置用放熱板の製造方法

② 特 願 平1-192514

② 出 願 昭58(1983)12月12日

⑥ 特 願 昭58-233938の分割

⑦ 発 明 者 篠 崎 和 夫 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会社東芝総合研究所内

⑦ 発 明 者 安 斎 和 雄 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会社東芝総合研究所内

⑦ 発 明 者 高 野 武 士 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会社東芝総合研究所内

⑦ 発 明 者 柘 植 章 彦 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会社東芝総合研究所内

⑪ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

⑭ 代 理 人 弁 理 士 則 近 憲 佑 外1名

## 明 細 書

## (産業上の利用分野)

本発明は、高熱伝導性窒化アルミニウム焼結体を用いる半導体装置用放熱板の製造方法に関する。

## (従来技術)

窒化アルミニウム(AlN)は常温から高温までの強度が高く(焼結体の曲げ強さは通常50 kg/cm<sup>2</sup>以上)、化学的耐性にも優れているため、耐熱材料として用いられる一方、その高熱伝導性、高電気絶縁性を利用して半導体装置の放熱板材料としても有望視されている。こうしたAlNは通常、融点を持たず、2200℃以上の高温で分解するため、薄膜などの用途を除いては焼結体として用いられる。

ところで、AlN焼結体は従来より常圧焼結法、ホットプレス法により製造されている。常圧焼結法では高密度化の目的でアルカリ土類金属酸化物などの化合物を焼結助剤として添加することが多い。ホットプレス法では、AlN単独又は助剤が添加されたAlNを用い、高温高圧下にて焼結す

## 1. 発明の名称

半導体装置用放熱板の製造方法

## 2. 特許請求の範囲

(1) 半導体装置用放熱板として酸素を1重量%以下含む窒化アルミニウムを主成分とし、これにイットリウム、ランタン、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ガドリウム、ジスプロシウムから選ばれる希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を希土類元素換算で0.01~15重量%添加した原料を成形、焼結して得られた窒化アルミニウム焼結体を用いることを特徴とする半導体装置用放熱板の製造方法。

(2) 製造された窒化アルミニウム焼結体は密度が理論密度の90%以上で、室温における熱伝導率が40 W/m・kである特許請求の範囲第1項記載の半導体装置用放熱板の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

[発明の目的]

る。

しかしながら、ホットプレス法では複雑な形状の焼結体の製造が難しく、しかも生産性が低く、高コストとなるという問題がある、一方、常圧焼結法ではホットプレス法のような問題を解消できるものの、得られたA<sub>2</sub>N焼結体はA<sub>2</sub>Nの理論熱伝導率(320 W/m・k)に比べて著しく低く、必ずしも良好な高熱伝導性を有するものではなかった。なお、ホットプレス法で造られたA<sub>2</sub>N焼結体のうち助剤が添加されたA<sub>2</sub>Nを原料とするものも、同様に熱伝導率の点で十分に満足するものではなかった。

(発明が解決しようとする課題)

本発明は、上記従来の問題点を解決するためになされたもので、高熱伝導率の窒化アルミニウム焼結体を得て、高性能の半導体用放熱板を提供しようとするものである。

[発明の構成]

(課題点を解決するための手段)

本発明は、半導体用放熱板として酸素を1重

混合して原料を調整する。但し、常圧焼結の場合は前記ボールミル等で粉砕、混合したものに更にバインダを加え、混練、造粒、整粒を行なって原料を調整する。ここで、A<sub>2</sub>N中に含まれる酸素量を限定した理由は、その量が1重量%を超えると、A<sub>2</sub>N中に固溶される酸素量が多くなって高熱伝導性のA<sub>2</sub>N焼結体の製造が困難となるからである。また、前記希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の添加量を限定した理由はその量を希土類元素換算で0.01重量%未満にすると焼結性の高い緻密なA<sub>2</sub>N焼結体を得られなくなり、かといってその量が同換算で1.5重量%を超えると原料粉末中のA<sub>2</sub>N粉末の絶対量が少なくなり、A<sub>2</sub>N焼結体本来の特性である耐熱性、高強度性が損われるばかりか、高熱伝導性も低下させるからである。なお、焼結手段として常圧焼結を採用した場合には前記希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の添加量を0.1～1.5重量%の範囲とすることが望ましい。

次いで、前記バインダを含む原料を金型、静水

圧以下含む窒化アルミニウムを主成分とし、これにイットリウム、ランタン、プロセオジウム、ネオジム、サマリウム、ガドリウム、ジスプロシウムから選ばれる希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を希土類元素換算で0.01～1.5重量%添加した原料粉末を成形、焼結して得られた窒化アルミニウム焼結体を用いた半導体装置用放熱板の製造方法である。

ここで放熱板とは放熱作用を奏するものであれば良く、例えばA<sub>2</sub>N絶縁体に配線が施された回路基板、パッケージ等も含む。

以下、本発明のA<sub>2</sub>N焼結体の製造方法を詳細に説明する。

まず、酸素が1重量%以下含むA<sub>2</sub>N粉末にイットリウム(Y)、ランタン(La)、プロセオジウム(Pr)、ネオジム(Nd)、サマリウム(Sm)、ガドリウム(Gd)、ジスプロシウム(Dy)から選ばれる希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を希土類元素換算で0.01～1.5重量%を添加し、ボールミル等を用いて粉砕、

圧又はシート成形等の手段により成形した後、成形体をN<sub>2</sub>ガス気流中にて700℃前後で加熱してバインダを除去する。つづいて、成形体を黒鉛又は窒化アルミニウムからなる容器にセットし、N<sub>2</sub>ガス雰囲気中にて1600～1850℃で常圧焼結を行なう。この際、比較的低温(1000～1300℃)で後述するガーネット相或いはペロブスカイト相がA<sub>2</sub>Nの粒界に生成され、更に高い1600～1850℃でガーネット相、ペロブスカイト相が融解し、その液相焼結機構によって常圧焼結がなされる。

回路基板の場合は導体との同時焼結技術を用いても良いし、厚膜、薄膜等の回路を形成しても良い。

一方、ホットプレス焼結の場合は前記ボールミルで粉砕、混合して調整した原料を1600～1800℃でホットプレスを行なう。

上述した原料の成形、焼結によりA<sub>2</sub>N焼結体を製造する。かかるA<sub>2</sub>N焼結体中の酸素含有量は、該酸素量を0.01重量%未満にすると、焼結性

の高い緻密なAlN焼結体が得難く、かといってその量が20重量%を越えると、熱伝導性の低下を招く。

#### (作 用)

本発明者らは、従来法で製造された助剤が添加されたAlN焼結体の低熱伝導性について種々検討した結果、この低熱伝導性はAlN焼結中の助剤量と共に焼結性に関与する酸素含有量に起因することを究明した、AlN焼結性を高めて緻密なAlN焼結体を得るために、酸素が含まれていることが必要であるが、酸素量が多くなると、高熱伝導性の阻害要因となることがわかった。

そこで、本発明者らは上記究明結果を踏えて更に鋭意研究したところ、酸素を1重量%以下含むAlN粉末に特定の希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を希土類元素換算で0.01~15重量%添加した原料を成形、焼結して所定の酸素を含む焼結体とすることによって、熱伝導率が例えば40W/m・k以上の高熱伝導性AlN焼結体を製造できることを見出した。このよう、本

ンが該固溶拡散された領域で散乱し、結果として熱伝導性の低下を招く。しかるに、AlN粉末中所定量添加して、AlN焼結体中の酸素を前記ガーネット相を構成する量に抑えて固定化し、AlNへの固溶拡散を阻止することによって、フォノンの散乱が少なくなり、結果的には熱伝導性が向上される。なお、AlNの粒界にはガーネット相とは別の組成式 $LnAlO_3$  ( $Ln$ : Y、La、Pr、Nd、Sm、Gd、Dyから選ばれる希土類元素)の形で表わされるペロブスカイト構造化合物相(以下、ペロブスカイト相と略す)が生成される場合もあり、この場合も全く同様な作用効果を示す。

#### (発明の実施例)

以下、本発明の実施例を詳細に説明する。

##### 実施例1

まず、酸素を1重量%含有するAlN粉末(平均粒径1 $\mu$ m)に酸化サマリウム粉末(平均粒径1 $\mu$ m)を3重量%添加し、ボールミルを用いて粉砕、混合して原料を調整した。つづいて、この

の酸素を1重量%以下とし、このAlN粉末に希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を発明方法で製造されたAlN焼結体が高熱伝導性を示すのは以下に説明する組織となることによるものと推定される。

所定量の酸素を含むAlN粉末に特定の希土類元素の酸化物もしくは炭酸塩の1種以上を所定量添加した原料を成形し、焼結すると、希土類元素がAlN中に存在する酸素と反応して、組成式 $3Ln_2O_3 \cdot 5Al_2O_3$  ( $Ln$ : Y、La、Pr、Nd、Sm、Gd、Dyから選ばれる希土類元素)の形で表わされるガーネット構造化合物相(以下、ガーネット相と略す)がAlNの粒界に生成され、AlNの結合に寄与すると共に、酸素を固定化する。しかしながら、酸素量が多くなると、ガーネット相として取り込まれない酸素が存在することになり、その酸素がAlN粒子に固溶拡散する、絶縁体の熱伝導率は弾性波(フォノン)の拡散によって支配されるが、酸素が固溶拡散したAlN粒子を含むAlN焼結体ではフォノ

原料を直径10mmのカーボン型に充填し、圧力300kg/cm<sup>2</sup>、温度1800℃の条件で1時間ホットプレスを行なってAlN焼結体を製造した。

##### 比較例1

酸素を3重量%含有するAlN粉末(平均粒径1 $\mu$ m)そのものを原料として用いた以外、実施例1と同様な方法によりAlN焼結体を製造した。

##### 比較例2

酸素を20重量%含有するAlN粉末(平均粒径0.9 $\mu$ m)に酸化サマリウム粉末(平均粒径1 $\mu$ m)を3重量%添加し、ボールミルを用いて粉砕、混合して原料を調整した。次いで、この原料を用いて実施例1と同様にホットプレスを行なってAlN焼結体を製造した。

しかして、本実施例1及び比較例1、2で製造されたAlN焼結体について約3.5mmの熱さに研磨した後、レーザフラッシュ法によって室温での熱伝導率を測定した。その結果、本実施例1のAlN焼結体では121W/m・kであったのに対し、比較例1のAlN焼結体では35W/m・k、比

較例2のA<sub>2</sub>N焼結体では3.2 W/m・kであった。

また、X線回折で各A<sub>2</sub>N焼結体の構成相を調べたところ、実施例1のA<sub>2</sub>N焼結体ではA<sub>2</sub>N相及びペロブスカイト相が、比較例1ではA<sub>2</sub>N相以外にかなりの量の酸窒化物相が、比較例2ではA<sub>2</sub>N相及びペロブスカイト相以外にかなりの量の酸窒化物相が、夫々検出された。

#### 実施例2

酸化サマリウム粉末の代わりに酸化ガドリニウム粉末を用いた以外、実施例1と同様に原料を調製し、これをホットプレスすることによりA<sub>2</sub>N焼結体を製造した。

製造されたA<sub>2</sub>N焼結体を約3.5 mmの厚さに研磨した後、レーザフラッシュ法によって室温での熱伝導率を測定したところ、1.23 W/m・kと極めて高い熱伝導性を示した。また、X線回折でA<sub>2</sub>N焼結体の組織を調べたところ、A<sub>2</sub>N相、ガーネット相が検出された。

#### 実施例3～9

原料を用いた以外、実施例3～9と同様な方法により製造したA<sub>2</sub>N焼結体の密度、熱伝導率を併記した。

第 1 表

	A <sub>2</sub> N粉末中の 酸素含有量 (重量%)	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> の添加量 (重量%)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	熱伝導率 (W/m・k)
実施例3	0.3	0.1	3.26	89
" 4	0.8	1.5	3.28	135
" 5	1.0	0.1	3.26	87
" 6	1.0	0.5	3.27	95
" 7	1.0	1.0	3.27	130
" 8	1.0	3.0	3.30	165
" 9	1.0	5.0	3.32	170
比較例3	1.0	0	2.50	38

上記第1表から明らかなように本実施例3～9のA<sub>2</sub>N焼結体は高密度でかつ高熱伝導性を有することがわかる。

また、本実施例3～9のA<sub>2</sub>N焼結体についてX線回折により組織を調べたところ、いずれもA

下記第1表に示す酸素含有量の異なるA<sub>2</sub>N粉末(平均粒径0.9 μm)に酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)粉末を同第1表に示す割合で添加し、ボールミルを用いて10時間湿式粉碎、混合して重量が200 gの混合粉末とした後、これら混合粉末にパラフィンを夫々7重量%添加し、造粒して7種の原料を調製した。つづいて、これら原料を300 kg/cm<sup>2</sup>の圧力で冷間成形して37 cm×37 cm×6 cmの寸法の板状体とした、次いで、これら板状体を窒素ガス雰囲気中で600℃まで加熱し、10時間保持して脱脂した後、窒化アルミニウム容器中にセットし、窒素ガス雰囲気化にて1800℃、2時間常圧焼結して7種のA<sub>2</sub>N焼結体を製造した。

製造された各A<sub>2</sub>N焼結体の密度、並びに実施例1と同様なレーザフラッシュ法による室温での熱伝導率を調べた。その結果を同第1表に併記した。なお、第1表には比較例3として酸化イットリウムを添加しないA<sub>2</sub>N粉末(酸素含有量1重量%)にパラフィンを7重量%添加し、造粒した

の放熱板に有効な高熱伝導性窒化アルミニウム焼結体を製造し得る方法を提供できる。

A<sub>2</sub>N相、ガーネット相、ペロブスカイト相及び僅かな酸窒化物相が検出されたが、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の添加量の多いA<sub>2</sub>N焼結体ほど酸窒化物相が減少して、ガーネット相が増大していた。

#### 実施例10～15

酸素を1重量%含有するA<sub>2</sub>N粉末(平均粒径1 μm)に平均粒径が1 μm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、Pr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末及びSm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末を夫々3重量%添加し、ボールミルを用いて10時間湿式粉碎、混合して混合粉末とした後、これら混合粉末にパラフィンを夫々7重量%添加し、造粒して調製した6種の原料を用いた以外、実施例3～9と同様な方法によりA<sub>2</sub>N焼結体を製造した。

製造された各A<sub>2</sub>N焼結体は、3.29 kg/cm<sup>2</sup>以上の密度を有し、かつ80 W/m・k以上の熱伝導率を示した。

〔発明の効果〕

以上詳述した如く、本発明によれば高密度で熱伝導率が  $40 \text{ W/m} \cdot \text{k}$  以上を示し、半導体装置の放熱板に有効な高熱伝導性窒化アルミニウム焼結体を得ることができる。

代理人弁理士 則近 憲佑  
同 松山 允之